

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

REC'D 31 MAR 2006

WIPO

PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000055194	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/014274	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 15.12.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 17.12.2003
Internationale Patentklassifikation (IPC) oder nationale Klassifikation und IPC INV. C07D487/04 A01N43/90		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 9 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 5 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enthalten, nur in elektronischer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Berichts</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 17.10.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 30.03.2006	
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Weisbrod, T Tel. +49 89 2399-8931 	

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/014274

Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
 - ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
 - ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf *(Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt)*:

Beschreibung, Seiten

1-42 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-12 eingegangen am 07.12.2005 mit Schreiben vom 06.12.2005

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
 - ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
 - ☐ Beschreibung: Seite
 - ☐ Ansprüche: Nr.
 - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/014274

Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung

1. ☐ Auf die Aufforderung zur Einschränkung der Ansprüche oder zur Zahlung zusätzlicher Gebühren hat der Anmelder:
- ☐ die Ansprüche eingeschränkt.
 - ☐ zusätzliche Gebühren entrichtet.
 - ☐ zusätzliche Gebühren unter Widerspruch entrichtet.
 - ☐ weder die Ansprüche eingeschränkt noch zusätzliche Gebühren entrichtet.
2. ☒ Die Behörde hat festgestellt, daß das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung nicht erfüllt ist, und hat gemäß Regel 68.1 beschlossen, den Anmelder nicht zur Einschränkung der Ansprüche oder zur Zahlung zusätzlicher Gebühren aufzufordern.
3. Die Behörde ist der Auffassung, daß das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung nach den Regeln 13.1, 13.2 und 13.3
- ☐ erfüllt ist.
 - ☐ aus folgenden Gründen nicht erfüllt ist:
4. Daher ist der Bericht für die folgenden Teile der internationalen Anmeldung erstellt worden:
- ☒ alle Teile.
 - ☐ die Teile, die sich auf die Ansprüche mit folgenden Nummern beziehen: .

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung
- | | |
|--------------------------------|-----------------------------|
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 8,11 |
| | Nein: Ansprüche 1-7,9-10,12 |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche |
| | Nein: Ansprüche 1-12 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-12 |
| | Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:

siehe Beiblatt

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/014274

Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:

siehe Beiblatt

Zu Punkt I

Grundlage des Bescheides

Mit Schreiben vom 06.12.2005 hat die Anmelderin einen geänderten Anspruchssatz eingereicht, in welchem die Bedeutung Halogenalkyl für R³ im Anspruch 1 gestrichen wurde. Der geänderte Anspruchssatz genügt den Artikeln 19(2) und 34(2)(b) PCT. Darüber hinaus hat die Anmelderin in ihrem Schreiben weitere Änderungen angedeutet, die jedoch in der Reinschrift des geänderten Anspruchssatzes nicht vorhanden sind. Solche möglicherweise gewünschte Änderungen werden in diesem Bescheid nicht berücksichtigt.

Die Anmeldung bezieht sich auf

- (i) 6-(2-Chlor-4-alkoxyphenyl)triazolopyrimidine der Formel (I) (Ansprüche 1-3),
- (ii) 6-(2-Chlor-4-alkoxyphenyl)triazolopyrimidine der Formel (I.1) (Anspruch 4),
- (iii) 6-(2-Chlor-4-alkoxyphenyl)triazolopyrimidine der Formel (I.2) (Anspruch 5),
- (iv) 6-(2-Chlor-4-alkoxyphenyl)triazolopyrimidine der Formel (I.3) (Anspruch 6),
- (v) Verfahren zur Herstellung von Verbindungen (I) (Ansprüche 7 und 8),
- (vi) Intermediate der Formeln (IV), (IVa), (V) und (Va) (Anspruch 9),
- (vii) Fungizide Mittel, die Verbindungen (I) enthalten (Anspruch 10),
- (viii) Saatgut, das Verbindungen (I) enthält (Anspruch 11) und
- (ix) Verfahren zur Bekämpfung von pflanzenpathogenen Schadpilzen, welches sich auf Verbindungen (I) bezieht (Anspruch 12).

Zu Punkt IV

Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung

Siehe Punkt V.3.4.

Zu Punkt V

Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1 Es wird auf folgende Dokumente verwiesen.

D1: WO 03/091254 A, 6. November 2003.

D2: WO 99/48893 A, 30. September 1999; in der Anmeldung erwähnt.

D3: WO 02/38565 A, 16. Mai 2002.

D4: US-B1-6 204 269, 20. März 2001.

D5: WO 02/083677 A, 24. Oktober 2002.

D6: WO 03/008417 A, 30. Januar 2003.

2 Neuheit

2.1 Die Ansprüche 1-7, 9-10 und 12 sind im Lichte von **D1** und/oder **D2** nicht neu.

2.2 **D1** bezieht sich auf Triazolopyrimidine zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, wie Fungi im Pflanzenschutz (siehe z.B. Seiten 13-17, sowie Seite 30, Zeilen 13-21), sowie Verfahren zu deren Herstellung. Die Verbindungen von **D1** überlappen mit den vorliegenden Verbindungen (I) und (I.2) der Ansprüche 1 und 5 wenn R^1 und R^2 in Formel (I) beziehungsweise D in Formel (I.2) zusammen mit dem Stickstoffatom ein fünf- oder sechsgliedriges Heterocyclyl oder Heteroaryl bilden, welches ein bis drei weitere Heteroatome aus der Gruppe O, N und S enthält, sowie die Gruppe X für Halogen bzw. Chlor steht. Zudem offenbart **D1** bereits spezifische Verbindungen (I)/(I.2) im Überlappungsbereich (Seiten 35-36, Beispiele 4 und 19) sowie, über deren Herstellungsverfahren (Anspruch 2, sowie Seite 34, letzter Absatz), die entsprechenden 5,7-Dihalogen-Intermediate der vorliegenden Formel (V). Die Ansprüche 1-3, 5, 9, 10 und 12 sind somit hinsichtlich des gesamten Überlappungsbereiches mit **D1** nicht neu.

D2 beschreibt Pflanzenfungizide, deren Herstellung, die entsprechenden fungiziden Mittel (Anspruch 10) und Verfahren zur Bekämpfung pflanzenpathogener Schadpilze (Anspruch 11; Seite 12, Zeilen 20-22; Seite 17, Zeilen 10-11). Bei den Verbindungen aus **D2** handelt es sich um 5-Halogen-6-phenyl-triazolopyrimidine, welche in der Phenyl-4'-Position OR^3 -substituiert sind, in der Phenyl-2'-Position ein Fluor- oder Chloratom (L^2) und in der Phenyl-6'-Position ein Wasserstoff-, Fluor- oder Chloratom tragen (L^1) (siehe Anspruch 1). Diese überlappen substantiell mit den vorliegenden Verbindungen (I) bis (I.3) wenn L (entsprechend L^1 in **D2**) für Wasserstoff oder Chlor und X für Halogen bzw. Chlor steht. Hergestellt werden die Verbindungen aus **D2** gemäss dem Verfahren laut vorliegendem Anspruch 7 über die 5,7-Dihydroxy- und 5,7-Dihalogen-Intermediate (IV) und (V) (**D2**, Seiten 10 und 11, Intermediate II und

VII). Die Ansprüche 1-7, 9-10 und 12 der Anmeldung sind somit hinsichtlich des gesamten Überlappungsbereiches mit **D2** nicht neu. In dem Zusammenhang wird erstens angemerkt, dass die Lehre von **D2** nicht lediglich auf die 2'-Fluor-substituierten Beispiele beschränkt ist, sondern auch die entsprechenden 2'-Chlor-substituierten Verbindungen umfasst. Zudem erfüllt der mit **D2** überlappende Bereich der vorliegenden Ansprüche nicht die Kriterien einer neuen Auswahl, weil der ausgewählte Bereich lediglich auf der eindimensionalen Auswahl von Chlor aus der zwei Werte umfassenden Liste L^2 von **D2** beruht, der ausgewählte Bereich gegenüber **D2** weder eng noch genügend weit von dem durch die Beispiele in **D2** illustrierten Bereich entfernt ist.

Die Ausführungen hinsichtlich **D1** und **D2** im Antwortschreiben der Anmelderin können diesseits nicht nachvollzogen werden.

D3 offenbart Triazolopyrimidine, welche die vorliegenden Verbindungen (I) und (I.1) bereits zum Teil generell umfassen. Verbindungen, die in Phenyl-2'-Position ein Chloratom, in Phenyl-4'-Position eine OR^3 -Gruppe und in 6'-Position ein Wasserstoff-, Chlor- oder Bromatom tragen sind in **D3** jedoch nicht spezifisch offenbart. Somit kann der Schutzgegenstand der Anmeldung als neue Auswahl aus der Lehre von **D3** mit dem spezifischen Substitutionsmuster am Phenylring als neues technisches Merkmal betrachtet werden.

D4 bezieht sich auf ähnliche Triazolopyrimidine, welche die vorliegenden Verbindungen (I) und (I.3) bereits zum Teil umfassen. Wie **D3** exemplifiziert auch **D4** keine Verbindungen mit dem spezifischen Substitutionsmuster am Phenylring der vorliegenden Verbindungen, sodass der Schutzgegenstand der Anmeldung als neue Auswahl aus der Lehre von **D4** betrachtet werden kann.

D5 und **D6** offenbaren weitere fungizide Triazolopyrimidine, welche in 5-Position mit Cyano, Alkoxy und Haloalkoxy (**D5**) bzw. mit Halogen, Cyano, Alkyl, Alkoxy und Haloalkoxy (**D6**) substituiert sein können. Die vorliegenden Verbindungen unterscheiden sich jedoch von diesen hinsichtlich ihrer Phenyl-Substituenten. **D5** und **D6** sind somit nicht für die Frage der Neuheit der Anmeldung relevant.

3 Erfinderische Tätigkeit und Einheitlichkeit

Insofern sich die Anmeldung auf neue Verbindungen (I), wie die in der Anmeldung exemplifizieren, bezieht gelten die folgenden Beobachtungen zum Kriterium der erfinderischen Tätigkeit.

- 3.1 Die Anmeldung beschreibt die Herstellung einer geringen Anzahl von Verbindungen (I), welche in der 5(X)-Position einen Chlor-Substituenten und in der Phenyl-6'(L)-Position stets ein Wasserstoffatom tragen (die Anmeldung, Seite 41). Solche Verbindungen (I) sind gegen bestimmte Schadpilze wirksam (die Anmeldung, Seiten 39-42) und scheinen nach zusätzlichen Angaben der Anmelderin eine stärkere fungizide Wirksamkeit aufzuweisen als Verbindungen aus **D2** mit einem (L¹)Fluor-Substituenten, der dem vorliegendem (L)Wasserstoffatom entspricht.
- 3.2 Die in der Anmeldung exemplifizierten (L)Wasserstoff-Verbindungen (I) können als neue Auswahl aus den Verbindungen von **D2** betrachtet werden. Ausgehend von **D2** als nächstliegendem Stand der Technik würde das der Anmeldung, hinsichtlich der darin gezeigten Beispiele, zu Grunde liegende technische Problem in der Selektion bestimmter pflanzenfungizider Triazolopyrimidine aus **D2** gesehen werden. Da eine stärkere fungizide Wirksamkeit der vorliegenden (L)Wasserstoff-Verbindungen (I) gegenüber den (L¹)Fluor-Verbindungen aus **D2** im Lichte der zitierten Dokumente nicht nahegelegt scheint, könnte solchen Verbindungen eine erfinderische Tätigkeit zugrunde zu liegen.
- 3.3 Allerdings müsste ein solcher überraschender Effekt für im Wesentlichen alle beanspruchten Verbindungen zutreffen, um eine erfinderische Tätigkeit für den gesamten Anspruchsbereich zu rechtfertigen. Gegenwärtig ist jedoch nicht plausibel, dass derselbe überraschende Effekt auch für (L)Chlor- und (L)Brom-Verbindungen (I) gegenüber den (L¹)Fluor-Verbindungen aus **D2** zutreffen würde.
- 3.4 Darüber hinaus wird hinsichtlich des vorliegenden Anspruchssatzes zudem angemerkt, dass sich die beanspruchten Verbindungen durch ein gemeinsames unterscheidendes Merkmal gegenüber den Verbindungen aus dem Stand der Technik auszeichnen müssen, um das Kriterium der Einheitlichkeit zu erfüllen. Ein solches gemeinsames unterscheidendes Merkmal ist gegenwärtig jedoch nicht ersichtlich. Infolgedessen erfüllt die Anmeldung nicht das Erfordernis der Einheitlichkeit. Im Lichte der Dokumente **D1** bis **D3** kann der vorliegende Anspruchssatz somit in verschiedene Gruppen von Erfindungen aufgeteilt werden. Angesichts der mangelnden

Neuheit des Anspruchssatzes erscheint es jedoch nicht zweckmässig eine detaillierte Aufteilung zum gegenwärtigen Zeitpunkt vorzunehmen. Vorläufig wird jedoch darauf hingewiesen, dass im Lichte von **D2** Verbindungen (I) mit X = Halogen und L = Wasserstoff; Verbindungen (I) mit X = Halogen und L = Chlor; sowie Verbindungen (I) mit X = Halogen und L = Brom drei verschiedenen Erfindungen angehören, wobei die zweite Gruppe mit Verbindungen (I) mit X = Halogen und L = Chlor im Lichte von **D1** in weitere Gruppen aufgeteilt werden können.

Hinsichtlich der Einheitlichkeit des Anspruchssatzes hat die Anmelderin in ihrem Schreiben erstaunlicherweise keine Stellung bezogen. Es wird angenommen, dass sie darauf in der regionalen Phase zurückkommen möchte.

Zu Punkt VII

Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

In der Beschreibung ist weder der in **D1** und **D3** bis **D6** offenbarte Stand der Technik noch die Dokumente selbst angegeben (Regel 5.1(a)(ii) PCT). Zudem ist die sich auf **D2** beziehende Passage in der Beschreibung, Seite 3, unzutreffend und irreführend, weil die in **D2** offenbarten Verbindungen nicht durch mindestens ein Fluoratom in ortho-Position des Phenylrings substituiert sein müssen.

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Die Ansprüche 1 und 4-6 sind als separate unabhängige Ansprüche formuliert, obwohl die Verbindungen der Ansprüche 4-6 unter den Umfang von Anspruch 1 zu fallen scheinen. Infolgedessen erfüllt der vorliegende Anspruchssatz nicht das von Artikel 6 PCT geforderte Kriterium der Knappheit.

O.Z. 6351-WO

4

- an amount of synthesis auxiliary is added at least once before or during the subsequent work-up by distillation of the resulting, generally clear, preferably neutralized product mixture, with the amount added in each case being such that no azeotrope of one or more components of the product mixture and the organosilane ester of the formula I is formed during the preferably fractional distillation under the conditions which prevail and the mass ratio of alcohol and synthesis auxiliary for carrying out the distillation is preferably set according to the relationship

$$m_{\text{HC-dist.}} = \frac{(m_{\text{alcohol-syn.}} + m_{\text{alcohol-neutr.}}) \cdot (100 - x)}{x} - m_{\text{HC-syn.}} \quad (2),$$

where

" $m_{\text{alcohol-syn.}}$ " is the amount of alcohol generally remaining after the esterification,

" $m_{\text{alcohol-neutr.}}$ " is the amount of alcohol added in the neutralization with alkoxide or alcoholic alkoxide solution,

" $m_{\text{HC-syn.}}$ " is the amount of synthesis auxiliary which was added during the esterification,

" $m_{\text{HC-dist.}}$ " is the additional amount of synthesis auxiliary which may be required for the distillation and

" x " is the proportion of the alcohol in the azeotrope to be distilled off in % by mass.

The total amount of synthesis auxiliary added to the reaction and/or product mixture is appropriate such that the excess alcohol present in the product mixture can be substantially removed from the system by distillation as such or as an azeotrope of synthesis auxiliary and alcohol which has, in particular, a boiling point lower than that of the desired silane ester.

To set the ratio of alcohol and synthesis auxiliary, preference is given to determining

O.Z. 6351-WO

5

the values given by the relationships (1) or (2) and proceeding according to the invention:

$$\frac{m_{\text{alcohol}}}{m_{\text{HC}}} = \frac{m_{\text{alcohol-syn.}} + m_{\text{alcohol-neutr.}}}{m_{\text{HC-syn.}} + m_{\text{HC-dist.}}} = \frac{x}{100 - x} \quad (1)$$

5

In this relationship:

" $m_{\text{alcohol-syn.}}$ " is the amount of alcohol generally remaining after the esterification,

" $m_{\text{alcohol-neutr.}}$ " is the amount of alcohol added in the neutralization with alkoxide or alcoholic alkoxide solution,

10 " $m_{\text{HC-syn.}}$ " is the amount of synthesis auxiliary which was added during the esterification,

" $m_{\text{HC-dist.}}$ " is the additional amount of synthesis auxiliary which may be required for the distillation and

" x " is the proportion of the alcohol in the azeotrope to be distilled off in % by mass.

15 The additional amount of synthesis auxiliary to be added in the work-up by distillation is then advantageously:

$$m_{\text{HC-dist.}} = \frac{(m_{\text{alcohol-syn.}} + m_{\text{alcohol-neutr.}}) \cdot (100 - x)}{x} - m_{\text{HC-syn.}} \quad (2)$$

20 For the use of the relationships (1) and (2), reference may also be made to the examples.

Compositions of possible azeotropes can generally be found in the standard literature, for example "Azeotropic Data", L. H. Horsley, (1952) American Chemical Society,

25 Washington.

O.Z. 6351-WO

21

salt formed is filtered off and

- an amount of synthesis auxiliary is added at least once before or during the subsequent work-up by distillation of the resulting product mixture, with the amount added in each case being such that no azeotrope of one or more components of the product mixture and the organosilane ester of the formula I is formed during the distillation under the conditions which prevail and the mass ratio of alcohol to synthesis auxiliary for carrying out the distillation is set according to the relationship

$$m_{\text{HC-dist.}} = \frac{(m_{\text{alcohol-syn.}} + m_{\text{alcohol-neutr.}}) \cdot (100 - x)}{x} - m_{\text{HC-syn.}} \quad (2),$$

where

" $m_{\text{alcohol-syn.}}$ " is the amount of alcohol remaining after the esterification,

" $m_{\text{alcohol-neutr.}}$ " is the amount of alcohol added in the neutralization with alkoxide or alcoholic alkoxide solution,

" $m_{\text{HC-syn.}}$ " is the amount of synthesis auxiliary which was added during the esterification,

" $m_{\text{HC-dist.}}$ " is the additional amount of synthesis auxiliary which may be required for the distillation and

" x " is the proportion of the alcohol in the azeotrope to be distilled off in % by mass.

2. The process as claimed in claim 1, wherein at least one synthesis auxiliary selected from the group consisting of hydrocarbons of the general formulae



or



O.Z. 6351-WO

22

or

 C_nH_n (IVc) with $4 \leq n \leq 8$

5 or corresponding alkyl-substituted cycloaliphatic or alkyl-substituted aromatic hydrocarbons or halogenated compounds of the abovementioned hydrocarbons is used.

10 3. The process as claimed in claim 1 or 2, wherein at least one hydrocarbon which is miscible, immiscible or partially miscible with the alcohol of the formula III is used.

4. The process as claimed in any of claims 1 to 3, wherein at least one hydrocarbon which is miscible with the organosilane ester formed in the reaction is used.

15 5. The process as claimed in any of claims 1 to 4, wherein the reaction of the starting materials organohalosilane of the formula II and alcohol of the formula III is carried out at a temperature of from -40 to 220°C .

20 6. The process as claimed in any of claims 1 to 5, wherein the reaction of the starting materials is carried out at a pressure in the range from 0.001 to 50 bar abs.

7. The process as claimed in any of claims 1 to 6, wherein the distillation for working up the product mixture from the reaction is carried out at a temperature at the bottom of from -40 to 220°C .

25 8. The process as claimed in any of claims 1 to 7, wherein the reaction is carried out in a homogeneous phase.

9. A process for preparing a composition comprising more than 98% by weight of organosilane ester of the formula I and less than 2% by weight of hydrocarbons



O.Z. 6351-WO

23

of at least one of the formulae IVa, IVb and IVc, in each case based on the total composition, by carrying out the process as claimed in any of claims 1 to 8 and discharging the fraction comprising more than 98% by weight of organosilane ester in the fractional distillation.

5

10. A composition comprising more than 98% by weight of an organosilane ester of the formula I and less than 2.0% by weight of at least one hydrocarbon of at least one of the formulae IVa, IVb and IVc, in each case based on the total composition, obtainable as claimed in claim 9.

10

11. The composition as claimed in claim 10 having a hydrocarbon content of from 0.001 to 1.5% by weight.

15

12. The composition as claimed in claim 10 or 11 having a content of an organosilane ester of from 99.0 to 99.99% by weight.

13. The composition as claimed in any of claims 10 to 12 having a content of an alcohol of from 0.0001 to 0.5% by weight.

20

14. A composition comprising more than 98% by weight of organosilane esters of the formula I and less than 2.0% by weight of at least one hydrocarbon of the formula IVa, IVb or IVc, based on the total composition.

25

15. The use of a composition as claimed in claim 14 or a composition obtained as claimed in any of claims 10 to 14 as precursor for producing a layer or film having a dielectric constant of $1 < \kappa \leq 4$.



This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☒ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.